

University of Groningen

Interstitial transition metals in silicon. Ab initio electronic structure calculations on cluster models

Aissing, Gerrard

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

1988

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Aissing, G. (1988). Interstitial transition metals in silicon. Ab initio electronic structure calculations on cluster models. s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Samenvatting

Interstitiële overgangsmetalen in silicium

Dit proefschrift beschrijft de elektronische toestanden van 3d overgangsmetaal onzuiverheden in silicium. Deze onzuiverheden veroorzaken zogenaamde diepe nivo's in silicium, die diep in de bandgap van silicium liggen. Onzuiverheden met diepe nivo's hebben een grote invloed op de eigenschappen van silicium, omdat ze in staat zijn de aanwezige ladingsdragers, die verantwoordelijk zijn voor de elektrische geleiding, op zeer efficiënte wijze in te vangen.

Voor de beschrijving van de onzuiverheid in het kristal is gekozen voor het cluster model. Een cluster bestaande uit het defect en zijn naaste omgeving wordt ingebed in de rest van het rooster. Alleen binnen het cluster worden de elektronen expliciet beschreven. Het nadeel is dat de interactie van de onzuiverheid met het (oneindig grote) kristal vervangen wordt door de interactie met een beperkt aantal atomen. Het voordeel is echter, dat we het cluster met standaard veel-elektronen methoden uit de moleculaire kwantum mechanica kunnen beschrijven.

Voordat de cluster aanpak is toegepast op onzuiverheden, is deze gebruikt om zuiver silicium te beschrijven. Daarmee kan onderzocht worden hoe de cluster resultaten zich verhouden tot de resultaten van berekeningen aan het kristal. Het blijkt, dat weliswaar *cluster effecten* vallen waar te nemen, maar dat deze lineair schalen met de de inverse van de cluster straal, zodat we deze uit twee of meer verschillende cluster berekeningen kunnen afschatten.

Vervolgens zijn berekeningen uitgevoerd aan 3d overgangsmetaal onzuiverheden in silicium. Van de meeste van deze onzuiverheden is bekend dat zij zich tussen de roosterplaatsen bevinden op of dicht bij posities met een tetraëdrische symmetrie. Het silicium cluster bestaat in deze berekeningen uit tien silicium atomen. Om de *afgekapte* bindingen aan het oppervlakte van dit cluster te verzadigen worden waterstofatomen gebruikt. Uit de resultaten van Hartree-Fock berekeningen blijkt, dat clusters van tien silicium atomen nog te klein zijn om de eigenschappen van overgangsmetaal onzuiverheden goed te beschrijven. Toch geven deze berekeningen al een redelijk kwalitatief beeld van de afhankelijkheid van de eigenschappen van de kernlading van het

overgangsmetaal.

Omdat slechts een klein gedeelte van het kristal expliciet in de berekening wordt meegenomen, moet de diëlectrische afscherming van de rest van het kristal op een andere manier in rekening worden gebracht. Bovendien ontbreekt in de Hartree-Fock methode de correlatie tussen de electronen. Daarnaast dient ook aandacht geschonken te worden aan de mogelijke invloed van onzuiverheden op de lokale geometrie. Daarom is een aantal berekeningen gedaan met titaan als test-voorbeeld, die een indruk pogen te geven van de grootte van deze effecten. De invloed van correlatie op de ionisatie potentiaal is afgeschat door de Hartree-Fock ionisatie potentiaal voor het atoom te vergelijken met de experimentele waarde en aan te nemen dat de resulterende atomaire correctie overdraagbaar is op het atoom in het cluster. Daarnaast is een configuratie interactie berekening gedaan voor titaan in $\text{Si}_{10}\text{H}_{16}$, waarin zowel enkele als dubbele excitaties ten opzichte van de Hartree-Fock golf functie zijn opgenomen. De resultaten van deze berekeningen geven met voornoemde schatting vergelijkbare waarden voor de correlatie correctie op de ionisatie potentialen. Deze correcties zijn aanzienlijk. Om te zien of toevoeging van gerelaxeerde *charge transfer* toestanden belangrijk is, zijn bovendien berekeningen gedaan, waarin de golf functie wordt uitgebreid met *charge transfer* toestanden met één gat op de omringende silicium atomen. Voor titaan blijkt deze uitbreiding niet veel invloed op de resultaten te hebben. Voor de afschatting van het effect van de diëlectrische respons van de rest van het kristal zijn twee modellen gebruikt. De modellen geven vergelijkbare resultaten: het effect van diëlectrische respons is energetisch tamelijk groot, maar het teken ervan is tegengesteld aan dat van de correlatie correctie, waardoor ze in het cluster gedeeltelijke tegen elkaar wegvallen. Het effect van rooster relaxatie blijkt niet erg groot te zijn.

Tenslotte zijn Hartree-Fock berekeningen gedaan aan titaan in grotere clusters: $\text{TiSi}_{30}\text{H}_{40}$ en $\text{TiSi}_{66}\text{H}_{64}$. Vóór deze berekeningen moest echter eerst de bestaande programmatuur aangepast worden, zodat de symmetrie van de clusters efficiënter uitgebuit wordt. Een aantal eigenschappen verandert niet meer noemenswaardig als er nog een schil silicium atomen aan $\text{TiSi}_{30}\text{H}_{40}$ wordt toegevoegd. Dit geldt met name voor het interne d-d spectrum en de ladingsdistributie in het centrale deel van de clusters. In feite lijkt het erop dat 40 waterstof atomen de rest van het kristal even goed beschrijven als 36 silicium atomen en 64 waterstof atomen.